

삼상유동층에서 기-액접촉면적과 물질전달 특성

이동현 · 김종오* · 한주희** · 김상돈

한국과학기술원 화학공학과
(1992년 8월 24일 접수, 1992년 11월 13일 채택)

Gas-Liquid Interfacial Area and Mass Transfer Characteristics in Three-Phase Fluidized Beds

Dong Hyun Lee, Jong Oh Kim, Joo Hee Han and Sang Done Kim

Dept. of Chem. Eng., Korea Advanced Institute of Science and Technology,
Teajon 305-701, Korea

(Received 24 August 1992; accepted 13 November 1992)

요 약

삼상유동층에서 기체(0.01-0.12 m/s) 및 액체유속(0.02-0.10 m/s)과 입자크기(1.0-8.0 mm)가 기-액접촉면적과 물질전달계수에 미치는 영향을 내경 0.142 m, 높이 2 m인 Plexiglas column에서 연구하였다. 기-액접촉면적은 기상 및 액상 유속에 따라 증가하나 입자크기 증가에 따라 감소했다가 증가하는 경향을 나타내었다. 액상물질 전달계수는 기포합체영역에서는 기체상의 유속에 따라 증가하나 기포분쇄영역에서는 기상의 유속에 무관하였다. 액상의 유속에 따른 액상물질전달계수의 변화는 무시할 정도로 작았고 입자크기에 따른 액상물질전달계수의 변화는 감소했다가 증가하는 최소점을 나타내었다. 삼상유동층에서의 물질전달계수를 입자의 Sherwood 수의 함수로 표시하여 isotropic turbulence theory를 근거로 Schmidt와 Reynolds 수로 상관식을 제시하였다.

Abstract—The effects of gas(0.01-0.12 m/s) and liquid velocities(0.02-0.10 m/s) and particle size(1-8 mm) on gas/liquid interfacial area(a) and mass transfer coefficient(k_L) have been determined in a 0.142 m-I.D. \times 2.0 m-high Plexiglas column. Gas-liquid interfacial area increases with increasing gas and liquid velocities, but it exhibits a minimum value in the bed of 6.0 mm particle. In the bubble coalescing regime, k_L increases with increasing gas velocity. However, in the bubble disintegrating regime, k_L is nearly independent of gas velocities. The effect of liquid velocity on k_L is found to be negligibly small. A minimum value of k_L exhibits the bed of 1.7 mm particle. The liquid side mass transfer coefficient in terms of Sherwood number in three-phase fluidized beds have been correlated with Schmidt and particle Reynolds numbers related to the energy dissipation rate in the bed based on the local isotropic turbulence theory.

1. 서 론

삼상유동층은 고체입자를 두 종류의 비혼합성 유체로

유동화시키는 조작으로 이루어진다[1]. 삼상유동층반응기의 응용은 최근에 와서 화학, 생화학 공정분야에서 폭넓게 이용되고 있다. 삼상유동층에서 기-액물질전달은 고체입자의 존재에 영향을 받고 많은 경우에 기-액물질전달이 총괄 물질전달계수를 지배한다고 알려져 있다

현주소: *동양시멘트(주), **한화그룹종합연구소

[2, 3]. 그러므로 액상물질전달계수(k_L)와 기-액계면적에 관한 자료는 삼상유동층의 설계에 절대적으로 필요한 자료이다. 삼상유동층에서 기-액접촉면적을 구하는 방법은 화학적인 방법과 물리적인 방법이 있다. Lee와 Worthington[4]은 $k_L a$ 와 a 를 분리하여 측정하기 위하여 $k_L a$ 는 물과 0.05 M sodium sulfate 용액에서 carbon dioxide의 흡수에 의하여 측정하였고, 기-액접촉면적은 light transmission 방법으로 측정하였다. 기포크기(l_b)는 구형으로 가정하고 $l_b = 6 \epsilon_g / a$ 관계로부터 계산하였다. 액상물질전달계수(k_L)는 기포크기가 증가함에 따라 증가한다고 보고하였다. Ostergaard[5]는 $k_L a$, k_L 과 a 에 대한 경험식을 제시하였다. CO_2 /carbonate bicarbonate buffer/glass beads 계를 이용한 화학적 흡수 방법으로 $k_L a$ 를 측정하였고 k_L 과 a 는 CO_2 /sodium hydroxide/glass beads 계에서 측정하였다. Fukushima[6]는 Lee와 Worthington[4]의 자료를 이용하여 dispersed bubble flow regime에서 $k_L a$, k_L 과 a 에 관한 관계식을 제시하였다. Dhanuka와 Stepanek[7]은 Robinson과 Wilke[8]가 제안한 산소의 탈착과 CO_2 의 화학적 흡수가 동시에 포함된 방법을 사용하여 5.86 mm glass beads를 사용한 삼상유동층에서 $k_L a$, k_L 과 a 를 측정하였다. 그들의 연구에서 입자크기에 따라 a 의 변화는 거의 없다고 보고하였다. 그러므로 $k_L a$ 는 입자크기에 따라 크게 변화됨을 알 수 있다. 더욱이 4.08과 5.86 mm 유리구슬의 삼상유동층에서 $k_L a$ 와 a 는 액체상유속에 따라 증가함을 발표하였다. Bubbly flow pattern에서는 물질전달계수가 복잡한 실험변수들의 의존성이 있으나 $k_L a$ 에 대한 일반적 표현이 필요하며 k_L 과 a 의 독립적인 값이 필요하다 [3, 9]. 그러므로 본 연구에서는 삼상유동층에서 기-액접촉면적(a)를 기포형상모델을 이용하여 계산하고 $k_L a$ 에서 k_L 만을 분리한 후 기포분쇄와 기포합체영역으로 구분하여 isotropic turbulence theory를 근거로 Schmidt와 Reynolds 수로 k_L 를 입자의 Sherwood 수로 표시하여 상관식을 제시하였다.

2. 실험

Fig. 1에서 보는 바와 같이 내경 0.142 m, 높이 2.0 m인 Plexiglas column을 반응기로 이용하여 실험을 수행하였다. 삼상유동층에서 기체상으로는 공기, 액체상으로는 수돗물을 사용하였고 고체상은 1.0, 1.7, 2.3, 3.0, 3.7, 5.0, 6.0과 8.0 mm인 glass beads를 사용하였다. 액체분산판으로는 직경 3 mm인 구멍 141개가 triangular pitch로 균일하게 배치된 다공판을 사용하였고, 기체상 분배기는 6.35 mm 직경인 구리관에 내경 1 mm인 26개의 orifice를 만들어 사용하였다. 압력을 측정하기 위하여 압력

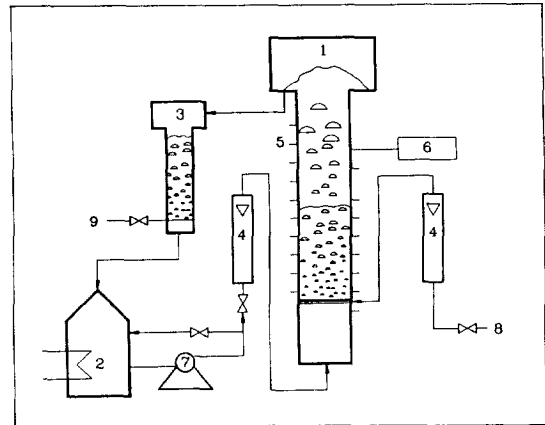


Fig. 1. Schematic diagram of the experimental apparatus.

- | | |
|-----------------|------------------------------|
| 1. Main column | 6. Oxygen analyzer |
| 2. Reservoir | 7. Pump |
| 3. Purge column | 8. Compressed air |
| 4. Rotameter | 9. Compressed N ₂ |
| 5. Pressure tap | |

tap을 100 mm 간격으로 12개를 유동층벽에 설치하였고, 각 지점의 정압을 water manometer로 측정하였다. 액상과 기상의 체류량은 유동층 압력강하, 팽창된 유동층 높이와 유체와 고체상의 물리적 특성치로부터 계산할 수 있다[10, 11]. 액체상을 sampling하기 위하여 분배기로부터 0.025, 0.065, 0.09, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7, 0.78, 0.88, 0.96 및 1.14 m에 설치된 solenoid valve들을 사용하여 동시에 13개의 축방향 위치로 배출되는 액체를 sampling하여서 용존산소량을 용존산소 측정기(YSI model 58)로 측정하였다. Sampling line으로부터 혼입될 수 있는 기포는 sampling water의 flow rate를 sampling port 각각에 설치된 globe valve를 조절하여 제거하였다. 전극에서 산소의 확산에 대한 액상 격막저항을 피하기 위하여 sample된 액체는 자기 stirrer를 사용하여 격렬하게 교반시켰다. 물의 용존산소를 일정하게 유지시키기 위하여 액체상온도는 저장조안에 냉각관을 설치하여 $23 \pm 0.3^\circ\text{C}$ 로 유지하였다. 공급용액의 용존산소를 탈리시키기 위하여 순수한 압축질소를 통과시키는 purge column을 설치하여 연속적인 조업을 가능하게 하였다.

2-1. 부피 물질전달계수, $k_L a$ 를 구하는 방법

부피 물질전달계수($k_L a$)를 구하기 위하여 유동층 높이에 따라 액상용존 산소농도값을 측정하고 축방향 분산모델을 이용하였다. 축방향 분산이 유동층내의 물질전달에 관여하므로 물질수지를 취하여 Danckwert's 경

계조건을 도입하여 계산하였다. 그 결과식을 유도하는 과정은 다음과 같다.

물질수지

$$\frac{1}{Pe_L} \frac{d^2c}{dx^2} - \frac{dc}{dx} + St_L(c^* - c) = 0 \quad (1)$$

$$\text{여기서 } x = z/Hs, \quad Pe_L = \frac{U_1 Hs}{\epsilon_1''' D}, \quad St_L = k_L a \frac{Hs}{U_1}$$

$$c^* = Py/He = y P_{TS} [1 + a'''(1-x)]/He \\ = a' + bx$$

$$P_{TS} = P_T(1 + a'')$$

$$a'' = \epsilon_1'' \rho_1 g (L - Hs)/P_T$$

$$a''' = (\epsilon_1''' \rho_1 + \epsilon_g''' \rho_g + \epsilon_s \rho_s) g Hs/P_{TS}$$

경계조건

$$c^+ = c^- + \frac{1}{Pe_L} [dc/dx]_{x=0}, \quad \text{for } x=0$$

$$[dc/dx]_{x=1} = 0, \quad \text{for } x=1$$

경계조건을 이용하여 식 (1)을 계산하면 ;

$$c = A_1 \exp(r_1 x) + A_2 \exp(r_2 x) + a' + bx - b/St \quad (2)$$

2-2. 기-액접촉면적, a 를 구하는 방법

기-액접촉면적(a)를 구하는 방법으로는 화학적인 방법과 물리적인 방법의 두 가지로 나누어진다. 화학적인 방법으로는 주로 NaOH 용액과 이산화탄소의 반응을 이용하여 기-액접촉면적(a)와 함께 부피 물질전달계수($k_L a$)를 구하는 동시측정법과 sodium sulfite의 산화반응을 이용하여 기-액접촉면적(a)만을 측정하는 방법이 있으나 화학적 방법은 화학용액을 사용하므로써 실제 측정하고자 하는 계의 물리-화학적 특성을 변화시키는 한계성이 있으나 물리적 방법은 사진촬영법과 저항탐침에 의한 기포크기로 계산하는 방법이 있다. 사진촬영법은 2차원 유동층에 적합한 방법이며 column의 벽이 불투명하거나 고정층에서의 기-액접촉면적을 측정하기는 불가능하고 3차원 삼상유동층에서는 적합하지 못한 방법이다. 저항탐침을 이용하는 경우에는 실제 측정하고자 하는 계의 물리화학적 특성을 변화시키지 않고 측정할 수 있는 장점이 있다. 그러므로 저항탐침을 사용하여 측정된 평균기포크기와 Han과 Kim[12]이 제시한 기포형상모델에서 얻어진 ellipsoidal과 spherical cap bubble 분율로부터 기-액접촉면적(a)를 계산하였다. 기포크기와 그 분포를 측정하기 위한 실험적 과정과

탐침의 자세한 내용은 이미 다른 문헌에 발표하였다 [13]. Han[14]의 ellipsoidal bubble fraction에 관한 실험결과를 기포합체영역과 기포분쇄영역으로 나누어 다음과 같은 상관식을 제시할 수 있다.

기포분쇄영역

$$\eta_{ellip} = 0.998 U_g^{-0.047} U_L^{0.051} d_p^{0.015} \quad (3)$$

식 (3)의 상관계수는 0.88이고 표준편차는 0.05이다.

기포합체영역

$$\eta_{ellip} = 39.08 U_g^{-1.158} U_L^{2.045} d_p^{0.428} \quad (4)$$

식 (4)의 상관계수는 0.96이고 표준편차는 0.23이다.

식 (3)과 (4)의 실험변수범위는 $0.02 \leq U_g \leq 0.12$ m/s, $0.02 \leq U_L \leq 0.10$ m/s, $1.0 \leq d_p \leq 8.0$ mm이다.

각 기포형상에 따른 기-액접촉면적(a)는 다음과 같다.

Spherical bubble

$$V_{sph} = \pi l_v^3/6 \quad (5)$$

$$S_{sph} = \pi l_v^2 \quad (6)$$

$$a_{sph} = \epsilon_g S_{sph}/V_{sph} = \epsilon_g \pi l_v^2/(\pi l_v^3/6) = 6 \epsilon_g/l_v \quad (7)$$

Ellipsoidal bubble

$$V_{ellip} = \frac{4}{3} \pi \left(\frac{l_v^{1.3}}{2} \right) \left(\frac{l_v}{2} \right)^2 \quad (8)$$

$$= \frac{\pi}{6} l_v^{3.3} \quad (9)$$

$$S_{ellip} = 2\pi \left(\frac{l_v^{1.3}}{2} \right)^2 + \frac{\pi}{4} l_v^{2.3} \ln \left(\frac{l_v^{0.3} + 1}{l_v^{0.3} - 1} \right) \quad (10)$$

$$a_{ellip} = \frac{\epsilon_g}{V_{ellip}/S_{ellip}} = \frac{3 \epsilon_g}{2 l_v} \left[2 l_v^{0.3} + \ln \left(\frac{l_v^{0.3} + 1}{l_v^{0.3} - 1} \right) \right] \quad (11)$$

Spherical cap bubble

$$S_{sphc} = 4 \pi 2.8 l_v^2 \quad (12)$$

$$V_{sphc} = \frac{\pi}{6} l_v [3 \times (2.8 l_v \sin 50)^2 + l_v^2] \quad (13)$$

$$a_{sphc} = \frac{\epsilon_g}{V_{sphc}/S_{sphc}} = \frac{24 \times 2.8 \times \epsilon_g}{l_v [3 \times (2.8 \sin 50)^2 + 1]} \quad (14)$$

그러므로 bed내의 interfacial area (a)는

$$a = \eta a_{ellip} + (1 - \eta) a_{sphc} \quad (15)$$

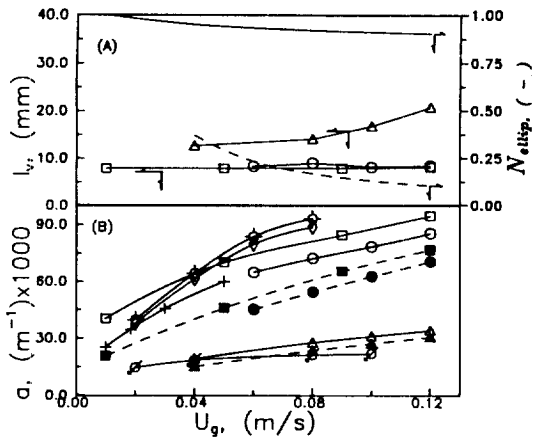
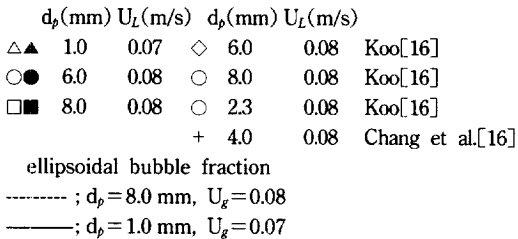


Fig. 2. Effect of gas velocity on bubble chord length, ellipsoidal bubble fraction and gas-liquid interfacial area in three-phase fluidized.



3. 결과 및 검토

3-1. 기-액접촉면적

삼상유동층에서 기-액접촉면적(a)과 기포크기(l_b)에 대한 기체유속의 영향을 Fig. 2에 나타내었다. Fig. 2(A)에서 보는 바와 같이 입자크기가 2.5 mm 이하인 기포 분쇄영역에서는 기체유속이 증가하면 기포크기가 크게 증가하나 입자크기가 6.0과 8.0 mm인 기포 분쇄영역에서는 기포크기는 크게 증가하지 않음을 알 수 있다. 이와 같은 현상은 Han과 Kim[15]의 flow regime map으로 설명할 수 있다. 기체유속이 증가하면 기포 분쇄영역에서 기포 분쇄영역으로 전이되고 Fig. 2(A)에서 알 수 있는 바와 같이 기포 형태도 ellipsoidal에서 spherical cap 형태로 변화되므로 기포 분쇄영역에서는 기포크기가 기체 유속이 증가함에 따라 크게 증가함을 알 수 있다. Fig. 2(B)는 기체유속이 0.01에서 0.12 m/s로 증가함에 따른 기-액접촉면적의 증가를 나타내었다. 기체유속이 증가함에 따라 입자크기가 1.0 mm인 경우 기포크기가 증가하지만 상대적으로 기상 체류량의 증가가 더 크므로 기-액접촉면적은 증가하며 기포 분쇄영역의 입자크기인 6.0과 8.0 mm의 경우는 기체유속이 증가함에 따라 기-

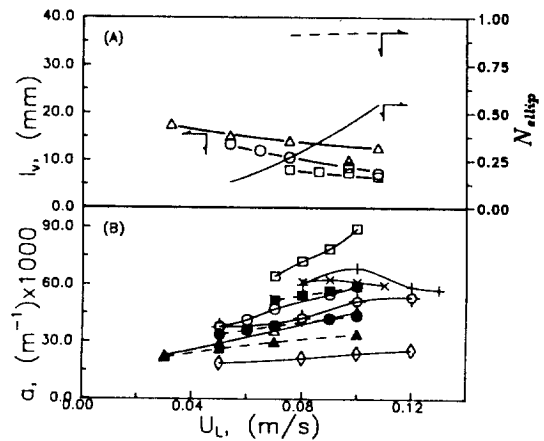
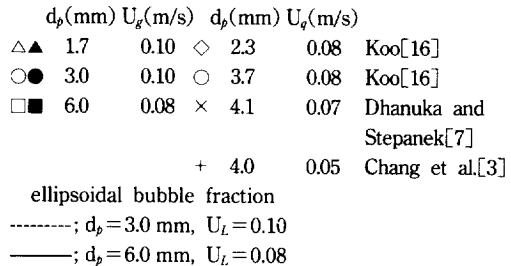


Fig. 3. Effect of liquid velocity on bubble chord length, ellipsoidal bubble fraction and gas-liquid interfacial area in three-phase fluidized.



액접촉면적이 크게 증가함을 알 수 있다. Fig. 2(B)에서 점선은 기-액접촉면적을 spherical cap으로 가정하고 계산된 값이다. 그림에서 알 수 있듯이 기포 분쇄영역인 1.0 mm인 경우는 spherical cap으로 계산한 경우와 거의 유사하지만 기포 분쇄영역인 6.0과 8.0 mm인 경우는 그 차이가 매우 큼을 알 수 있다. 또한 Fig. 2(B)에서 보는 바와 같이 Han과 Kim[12]이 제시한 기포형상모델을 근거로 계산된 기-액접촉면적(a) 값과 sodium sulfate의 산화반응을 이용하여 기-액접촉면적을 계산한 Koo[16]의 결과가 유사함을 알 수 있다. 이와 같은 결과로부터 삼상유동층내의 flow regime, 즉 기포 분쇄에서 기포 분쇄영역으로 전환됨에 따라 기포 형태가 ellipsoid에서 spherical cap으로 변화됨을 알 수 있다.

삼상유동층에서 기포크기와 ellipsoidal 기포의 분율에 대한 액체유속의 영향을 Fig. 3(A)에 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 액체유속이 증가함에 따라 기포크기는 감소하고 ellipsoidal bubble 분율은 증가함을 알 수 있다. 3차원탑의 삼상유동층에서는 액체유속의 증가가 기포를 분쇄시켜주는 효과가 있다고 보고되었으나 [14, 17, 18] 2차원탑에서 액체유속의 증가는 기포크기

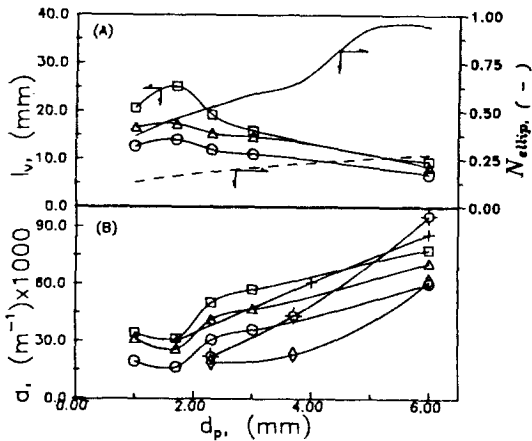


Fig. 4. Effect of particle size on bubble chord length, ellipsoidal bubble fraction and gas-liquid interfacial area in three-phase fluidized.

를 증가시킨다고 보고하였다[19]. 이러한 결과는 2차원탑이 3차원탑보다 wall effect를 많이 받음으로 인하여 액체상유속의 증가가 기포를 분쇄시켜 주는 효과보다는 벽면에서의 마찰에 따른 효과가 더 크게 작용하기 때문으로 사료된다. Jin 등[20]에 따르면 기포합체영역에 있는 기포크기는 기포탑에서의 기포크기보다 더 커지므로 기상체류량이 기포탑보다 적어진다고 보고하였다. Page[21]에 의하면 액체상유속의 증가가 기포크기를 작게 해 주는 이유는 액체상유속이 증가함에 따라 유동층이 팽창됨으로써 apparent bed viscosity가 감소하여 결과적으로 기포합체속도를 감소시킴으로써 기포의 크기는 감소한다고 보고하였다. 즉 액체유속의 증가에 따라 기포크기가 감소하고 유동층내의 apparent bed viscosity가 감소하므로 ellipsoidal bubble fraction은 증가함을 알 수 있다. Fig. 3(B)는 액체유속에 따른 기-액 접촉면적(a)의 변화를 보여주고 있다. 그림에서 보는 바와 같이 액체유속이 증가함에 따라 기-액접촉면적(a)는 증가함을 알 수 있다. Dhanuka와 Stepanek[7]과 Chang 등[3]의 결과에 따르면 액체유속의 증가에 따라 기-액접촉면적(a)는 증가하다가 최대점을 지난 후 감소하는 경향을 나타내었다. 그 이유는 액체상유속이 증가하면 두 가지 상반되는 효과 즉 난류의 증가와 유

동층내의 고체상 체류량의 감소가 작용한다. 낮은 액체유속에서는 전자가 지배적이고 높은 액체유속에서는 후자가 지배적이다. 그러나 본 실험의 액체유속은 전자가 지배적인 영역이므로 액체유속 증가에 따라 기-액접촉면적(a)가 증가함을 알 수 있다.

삼상유동층에서 기포크기와 ellipsoidal bubble fraction에 대한 입자크기의 효과를 Fig. 4(A)에 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 기포크기는 입자크기에 따라 증가했다가 감소함을 알 수 있다. Kim 등[10]에 의하면 입자크기가 2.5 mm 이하인 경우 액상유동층에 gas를 injection하였을 때 기포합체에 의하여 층 수축이 일어난다고 발표하였다. 그러므로 입자크기가 2.5 mm 이하에서 기포합체가 시작되며 1.7 mm에서 기포크기가 최대점을 나타냄을 알 수 있다. 한편 Bruce와 Revel-chion[22]은 입자크기가 작은 경우 입자간 응집현상이 심하여 액체의 겔보기 표면장력이 증가되므로 기포크기는 기포탑보다 커진다고 발표하였다. 또한 Kim[17]에 따르면 삼상유동층에서 기포탑보다 작은 기포크기를 갖는 입자크기는 2.5 mm임을 알 수 있다. 기체유속이 낮은 경우($U_g < 0.04$ m/s)에는 입자크기가 증가함에 따라 기포합체에서 기포분쇄영역으로 전환됨에 따라 기포분쇄가 증가하며 ellipsoidal bubble fraction이 증가함을 알 수 있다. 또한 Kim[17]에 따르면 입자크기가 증가함에 따라 삼상유동층의 팽창된 층높이가 감소하고 층밀도가 증가하므로 유체간 혼합정도와 난류특성이 증가한다고 보고하였다. 이러한 난류특성의 증가는 기포분쇄효과를 나타내므로 ellipsoidal bubble fraction이 증가함을 알 수 있다. Fig. 4(B)는 입자크기에 따른 기-액접촉면적(a)의 변화를 나타내었다. 그림에서 알 수 있듯이 기포합체영역인 2.5 mm 이하인 경우는 기-액접촉면적이 기포탑보다 작으며 기포분쇄영역인 3.0과 6.0 mm인 경우는 기-액접촉면적이 입자크기가 증가함에 따라 증가함을 알 수 있다.

3-2. 물질전달계수

삼상유동층에서 부피 물질전달계수($k_L a$)와 액상물질 전달계수(k_L)에 대한 기체유속의 영향을 Fig. 5에 나타내었다. Fig. 5(A)는 입자크기가 1.7, 2.3, 3.0, 6.0과 8.0 mm인 경우 기체유속이 0.02에서 0.12 m/s로 변화할 때 부피 물질전달계수($k_L a$)의 변화를 나타내었다. 그림에서 알 수 있는 바와 같이 기체상유속에 따라 $k_L a$ 는 증가함을 알 수 있다. 이와 같은 결과는 다른 연구자들의 결과와 일치하였다[3, 23]. 기체유속이 증가하면 기상체류량이 증가하고, Fig. 2(B)의 기-액접촉면적에서 알 수 있는 바와 같이 기-액접촉면적(a)가 더욱 증가하므로 $k_L a$ 가 증가함을 알 수 있다. 또한 기체상의 유입에 의해

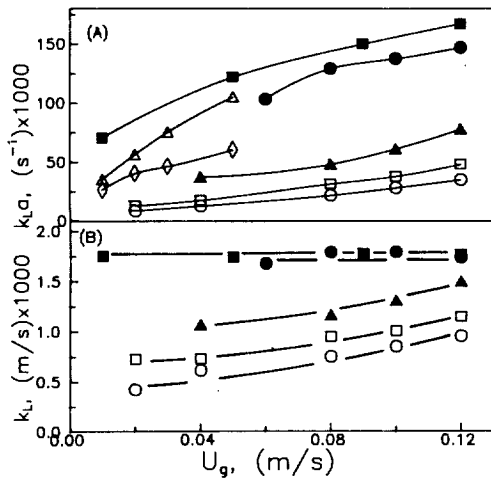


Fig. 5. Effect of gas velocity on volumetric mass transfer coefficient and liquid side mass transfer coefficient in the bed.

d_p (mm)	U_L (m/s)	d_p (mm)	U_L (m/s)	
○ 1.7	0.05	■ 8.0	0.08	Koo[16]
□ 2.3	0.05	◇ 4.0	0.10	Chang et al.[3]
▲ 3.7	0.05	△ 6.0	0.10	Chang et al.[3]
● 6.0	0.08			

들어온 에너지가 액체상으로 전달되어 작은 크기의 eddy를 형성하고 이 작은 eddy의 소멸에 의한 energy dissipation rate의 증가에 따라 k_L 이 증가하여 부피 물질전달계수($k_L a$)를 증가시킨다고 할 수 있다. Fig. 5(B)는 기체유속에 따른 액상의 물질전달계수(k_L)의 변화를 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 기포합체영역인 입자크기 1.0, 1.7 및 2.3 mm인 경우는 기체상유속에 따라 k_L 이 증가하지만 기포분쇄영역인 입자크기 6.0과 8.0 mm인 경우는 기체유속에 따른 k_L 의 변화는 거의 없음을 알 수 있다. 이와 같은 결과는 Chang 등[3]과 같은 결과이며 기포합체영역인 경우 기체유속에 따라 기포크기가 커지며 기포형태가 spherical cap 형태로 전환됨에 따라 기포뒷면에 형성된 wake의 자유운동에 의한 k_L 의 증가를 가져온다고 할 수 있다. 그러나 기포분쇄영역인 입자크기가 6.0과 8.0 mm인 경우는 Fig. 2(A)에서 보는 바와 같이 기포크기도 작고 기포형태도 ellipsoidal fraction이 0.95 이상이므로 액상물질전달계수(k_L)에 대한 기체유속의 영향이 무관함을 알 수 있다.

삼상유동층에서 부피 물질전달계수($k_L a$)와 액상물질전달계수(k_L)에 대한 액체유속의 영향을 Fig. 6에 나타내었다. Fig. 6(A)에서 보는 바와 같이 액체유속이 증가함에 따라 $k_L a$ 는 증가하다가 최대점을 보인 후 약간 감소함을 알 수 있다. 이와 같은 결과는 Fig. 3(B)의 기-

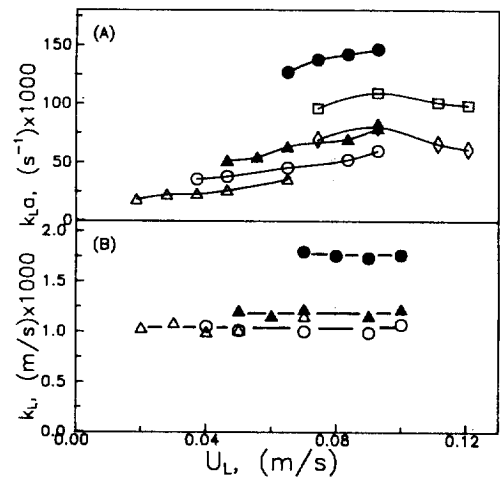


Fig. 6. Effect of liquid velocity on volumetric mass transfer coefficient and liquid side mass transfer coefficient in the bed.

d_p (mm)	U_L (m/s)	d_p (mm)	U_L (m/s)	
△ 1.0	0.10	◇ 6.0	0.05	Nguyen-Tien et al. [22]
○ 2.3	0.10	□ 4.0	0.06	Chang et al.[3]
▲ 3.0	0.10			
● 6.0	0.10			

액접촉면적의 설명에서 언급한 바와 같이 액체상유속이 증가하면 두 가지 상반되는 효과 즉 액상의 turbulence 증가와 고체상 체유량의 감소에 의하여 기-액접촉면적(a)과 부피 물질전달계수($k_L a$)가 액체유속에 따라 증가하다가 최대점을 보인 후 감소하는 것으로 추정된다. 그러나 Fig. 6(B)에서 보는 바와 같이 액상물질전달계수(k_L)의 변화가 액체상유속의 증가에 따라 무시할 정도로 작음을 알 수 있다. 이와 같은 결과는 액체유속의 증가에 따라 두 가지 상반된 효과가 작용하기 때문이다. 액체상의 turbulence 증가로 wake가 증가하여 k_L 을 상승시키는 요인으로 작용하지만 동시에 액체상의 momentum 증가에 따른 기포크기감소를 유도하고 Fig. 3(A)에서 알 수 있는 바와 같이 액체유속이 증가함에 따라 ellipsoidal bubble fraction의 증가로 k_L 을 감소시키는 요인으로 상쇄되어 액체유속의 증가에 따른 k_L 의 변화는 거의 없음을 알 수 있다.

Fig. 7은 삼상유동층에서 부피 물질전달계수($k_L a$)와 액상물질전달계수(k_L)에 대한 입자크기의 영향을 나타내었다. Fig. 7(A)에서 알 수 있는 바와 같이 부피 물질전달계수($k_L a$)는 입자크기에 따라 감소하다가 최소점을 보인 후 증가하는 것을 알 수 있다. 이와 같은 결과는 대부분의 연구자들의 결과와 일치한다[23-27].

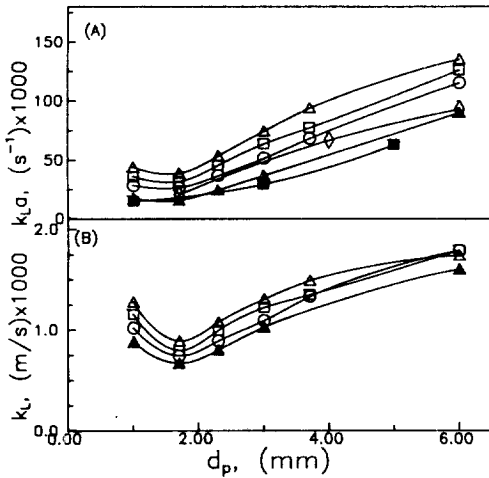


Fig. 7. Effect of particles size on volumetric mass transfer coefficient and liquid side mass transfer coefficient in the bed.

$U_g(\text{m/s})$		$U_L(\text{m/s})$		
▲ 0.04	0.07	◇ 6.0	0.08	Chang et al.[3]
○ 0.08	0.07	■ 2.3	0.08	Nguyen-Tien et al. [22]
□ 0.10	0.07			
△ 0.12	0.07			

Massimilla 등[24]은 기포합체영역인 2.5 mm 이하인 입자(0.22, 0.5, 0.8 mm)를 사용하였으므로 입자크기에 따라 $k_L a$ 는 감소함을 알 수 있다. Fig. 7(B)에서 k_L 이 입자크기에 따라 감소했다가 증가하는 최소점을 갖는 이유는 Fig. 4의 기포크기에서 알 수 있는 바와 같이 입자크기가 1.7 mm인 경우 기포크기가 최대값을 갖으며 기포크기가 커지면 기포의 상승속도도 커짐을 알 수 있다. 기포의 상승속도가 커지면 기포의 체류시간이 감소하고 surface renewal rate도 감소되므로 입자크기 1.7 mm에서 k_L 이 최소값을 갖는다. 또한 기포분쇄영역에서 입자크기가 증가하면 입자의 중력이 증가하여 고체 체류량이 증가하고 기포분쇄에 의한 유동층내를 통과하는 기포의 상승속도가 저하되어 기-액간의 접촉시간이 증가한다. 그러므로 고체 체류량의 증가는 기포상승속도를 감소시키고 surface renewal rate를 증가시키므로 입자크기가 증가함에 따라 k_L 이 증가됨을 알 수 있다.

삼상유동층에서 local isotropic turbulence theory에 근거한 액체상의 energy dissipation rate는 각각의 상 체류량, 유체의 물리적 특성과 그 속도에 의하여 다음과 같이 계산될 수 있다[3, 28, 29].

$$P_r = \frac{[(U_1 + U_g)(\epsilon_g \rho_g + \epsilon_l \rho_l + \epsilon_s \rho_s) - U_1 \rho_l] g}{\epsilon_l \rho_l} \quad (16)$$

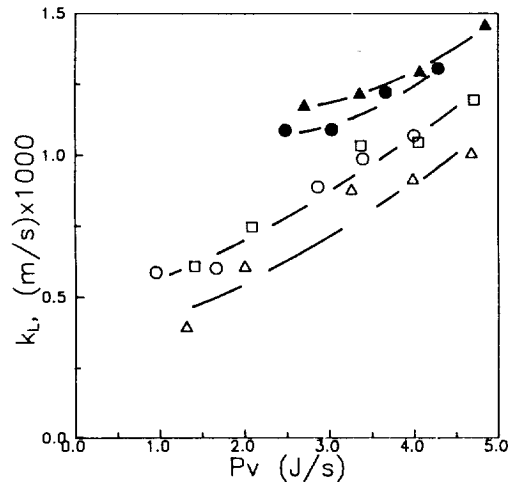


Fig. 8. Effect of energy dissipation rate on k_L in three-phase fluidized beds.

$d_p(\text{mm})$	$d_p(\text{mm})$
○ 6.0	■ 8.0
△ 1.0	▲ 6.0
□ 7.0	

액상물질전달계수(k_L)는 주로 난류영역에서 small-scale eddy에 의하여 지배되므로 Fig. 8에 energy dissipation rate(P_r)에 따른 k_L 의 영향을 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 P_r 가 증가함에 따라 k_L 이 증가함을 알 수 있다. Energy dissipation rate가 증가한다는 것은 eddy velocity를 증가시키고 유동층내에 있는 eddy length를 감소시킨다고 보고하였다[28]. 높은 속도를 갖는 micro-eddy는 turbulence를 일으키기에 더 효과적이며 다른 상과의 접촉시간을 감소시키므로[30], 이러한 micro-eddy들은 fluid element들간의 접촉빈도를 증가시키므로 액상물질전달계수(k_L)를 증가시킨다고 생각된다.

3-3. 상관식

기체유속이 증가함에 따라 유동층내의 gas flow pattern이 기포분쇄에서 기포합체영역으로 전환되므로 삼상유동층에서 액상물질전달계수(k_L)를 isotropic turbulence theory에 근거하여 상관식을 제시하였다.

기포분쇄영역

$$\frac{k_L d_p}{D} = 2.15 \times 10^{-4} (\nu/D)^{0.5} \left(\frac{P_r d_p^4}{\nu^3} \right)^{0.419} \quad (17)$$

식 (17)의 상관계수는 0.92이고 표준편차는 0.25이다.

기포합체영역

$$\frac{k_L d_p}{D} = 1.23 \times 10^{-3} (v/D)^{0.5} \left(\frac{P_v d_p^4}{v^3} \right)^{0.331} \quad (17)$$

식 (18)의 상관계수는 0.99이고 표준편차는 0.13이다.

식 (17)과 (18)의 실험 변수 범위는 $0.01 \leq U_g \leq 0.12$ m/s, $0.02 \leq U_L \leq 0.10$ m/s, $1.0 \leq d_p \leq 8.0$ mm이다.

4. 결 론

이상의 결과로부터 얻은 중요한 결론은 다음과 같다.

(1) 기-액접촉면적(a)는 기체상유속, 액체상유속의 증가에 따라 증가하였지만 입자크기에 따라서는 감소했다가 증가하는 최소점을 보였다.

(2) 액상물질전달계수(k_L)는 기포합체영역에서 기체상의 유속에 따라 증가하였지만 기포분쇄영역에서는 기체상의 유속에 무관하였다.

(3) 액체상유속에 따른 액상물질전달계수(k_L)의 영향은 무시할 정도로 작고 입자크기에 따라서는 최소점을 갖는다.

(4) 삼상유동층에서의 물질전달계수를 입자의 Sherwood 수의 함수로 표시하여 isotropic turbulence theory를 근거로 Schmidt와 Reynolds 수로 상관식을 제시하였다.

사용기호

- A_1 : parameter in eq. (2), $\{Br_2 \exp(r_2) - br_1\}/N$
 A_2 : parameter in eq. (2), $\{-Br_1 \exp(r_1) - br_2\}/N$
 a : gas/liquid specific interfacial area [l/m]
 B : parameter in eq. (2), $(a' - c^- - b/St)Pe - b$
 c : liquid phase oxygen concentration [$kmol/m^3$]
 c^- : liquid phase oxygen concentration in calming section [$kmol/m^3$]
 c^+ : liquid phase oxygen concentration above the distribution at $x=0$ [$kmol/m^3$]
 c^* : saturation concentration [$kmol/m^3$]
 c_o : inlet/initial concentration [$kmol/m^3$]
 D : liquid phase diffusivity of solute gas [m^2/s]
 dp : particle diameter [m]
 g : acceleration due to gravity [m/s^2]
 H : Henry's constant [$Pa \cdot m/kmol$]
 H_s : height of three-phase fluidized bed [m]
 k_L : liquid phase mass transfer coefficient [m/s]
 $k_L a$: volumetric mass transfer coefficient [l/s]
 L : column height [m]
 l_b : bubble chord length [m]
 N : parameter implicit in eq. (2), $r_1^2 \exp(r_1) - r_2^2 \exp(r_2)$

- P : pressure [Pa]
 Pe_L : Peclet number defined by $U_L H_s / \epsilon_1''' D$ [-]
 P_T : pressure at the top of bubble column [Pa]
 P_{TS} : pressure at the top of three phase zone [Pa]
 P_v : energy dissipation rate [J/s]
 Re_p : Reynolds number based on the energy dissipation rate, $P_v dp^4 / v^3$ [-]
 S : bubble surface [m^2]
 Sh_p : Sherwood number in terms of $k_L a$, $k_L dp / D$ [-]
 St : Stanton number defined by $k_L a H_s / U_L$ [-]
 U : superficial velocity [m/s]
 V : bubble volume [m^3]
 x : dimensionless axial coordinate [-]
 y : gas phase mole fraction of oxygen [-]

그리스 문자

- ϵ : phase holdup [-]
 $\epsilon_1 + \epsilon_g$: bed porosity [-]
 ν : kinematic viscosity [m^2/s]
 ρ : density [kg/m^3]
 η : bubble fraction [-]

상첨자

- " : two phase
 "' : three phase

하첨자

- g : gas phase
 l : liquid phase
 s : solid phase
 $ellip$: ellipsoidal
 sph : spherical
 $sphc$: spherical cap

참고문헌

1. Yu, Y. H.: "Bubble Characteristics and Local Liquid Velocity in Two and Three Phase Fluidized Beds", Ph. D. Thesis, KAIST(1989).
2. Alvarez-Cuenca, M. and Nerenberg, M. A.: *Can. J. Chem. Eng.*, **59**, 739(1981).
3. Chang, S. K., Kang, Y. and Kim, S. D.: *J. Chem. Eng. Japan*, **19**, 524(1986).
4. Lee, J. C. and Worthington, H.: Fluidization and Its Application, Angelino et al., Eds., p. 409, Capadues-Editions, Toulouse(1974).
5. Ostergaard, K.: *AIChE. Symp. Ser.*, **74**, 822(1978).
6. Fukushima, S.: *J. Chem. Eng. Japan*, **12**, 489(1979).
7. Dhanuka, V. R. and Stepanek, I. B.: *AIChE J.*, **26**,

- 1029(1980).
8. Robinson, C. W. and Wilke, C. R.: *AIChE J.*, **20**, 285 (1974).
9. Muroyama, K. and Fan, L. S.: *AIChE J.*, **31**, 1(1985).
10. Kim, S. D., Baker, C. G. J. and Bergougnou, M. A.: *Can. J. Chem. Eng.*, **53**, 134(1975).
11. Kang, Y., Suh, I. S. and Kim, S. D.: *Chem. Eng. Commun.*, **34**, 1(1985).
12. Han, J. H. and Kim, S. D.: *Chem. Eng. Sci.*, **47**, in press(1992).
13. Kim, J. O. and Kim, S. D.: *Particulate Sci. & Tech.*, **5**, 309(1987).
14. Han, J. H.: "Hydrodynamic Characteristics of Three Phase Fluidized Beds", Ph. D. Thesis, KAIST (1990).
15. Han, J. H. and Kim, S. D.: *Chem. Eng. Commun.*, **94**, 9(1990).
16. Koo, J. K.: "Gas-Liquid Interfacial Area and Phase Holdup Characteristics in Three-Phase Fluidized Beds", M. S. Thesis, KAIST(1987).
17. Kim, J. O.: "Bubble Characteristics in Two and Three Phase Fluidized Beds of Floating Contractors", MS Thesis, KAIST(1986).
18. Song, G. H. and Fan, L. S.: Proc. World Congress III of Chem. Eng., **2**, 504(1986).
19. Kim, S. D., Baker, C. G. J. and Bergougnou, M. A.: *Chem. Eng. Sci.*, **32**, 1299(1977).
20. Jin, G. T., Kim, S. D. and Choi, I. S.: Proc. World Congress III of Chem. Eng., **2**, 492(1986).
21. Page, R.: "Three Phase Fluidization", Ph. D. Dissertation, Cambridge University(1966).
22. Bruce, P. N. and Revel-Chion, L.: *Powder Tech.*, **10**, 243(1974).
23. Nguyen-Tien, K., Patwari, A. N., Schumpe, A. and Deckwer, W.-D.: *AIChE J.*, **31**, 194(1985).
24. Massimilla, L., Majuri, N. and Signorini, P.: *Ricerca Sci.*, **29**, 1934(1959).
25. Lee, M. S.: "The Characteristics of Gas-Liquid Mass Transfer in Three Phase Fluidized Beds", M. S. Thesis, Seoul City University(1985).
26. Kim, J. O. and Kim, S. D.: *Can. J. Chem. Eng.*, **68**, 386(1990).
27. Lee, D. H., Kim, J. O. and Kim, S. D.: *Chem. Eng. Commun.*, in press(1992).
28. Kang, Y. and Kim, S. D.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **25**, 717(1986).
29. Suh, I. S., Jin, G. T. and Kim, S. D.: *Int. J. Multiphase Flow*, **11**, 255(1985).
30. Clift, R., Grace, J. R. and Weber, M. E.: "Bubbles, Drops, and Particles", Academic Press, New York (1978).